

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN(11)Publication number : **03-126765**(43)Date of publication of application : **29.05.1991**

(51)Int.Cl.

**C08L101/00
C08K 3/00
H01L 23/373**(21)Application number : **02-263694**(71)Applicant : **SIEMENS AG
HOECHST AG**(22)Date of filing : **01.10.1990**(72)Inventor : **CRIENS RALF
BOETZL FRANZ DR
FLEISCHER DIETRICH
KIRSCH GUENTER DR**

(30)Priority

Priority number : **89 3932882** Priority date : **02.10.1989** Priority country : **DE****(54) HIGH-HEAT RESISTANT COMPOSITE MATERIAL**

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a high-heat resistant composite material comprising a high-heat resistant thermoplastic polymer and a heat-conductive mineral crystal filler, having an excellent thermal conductivity and electrical insulation and suitable for the production of coatings and containers for electric and electronic devices.

CONSTITUTION: An extrusion-moldable and injection-moldable composite material having a heat conductivity of at least 1 W/mK, a hot form stability at 180°C or higher and an electrical insulation resistance of at least 3 kV/mm, which comprises (A) 15 to 50 wt.%, pref. 20 to 35 wt.%, of a high-heat resistant thermoplastic polymer having a hot form stability at 180°C or higher, pref. a partially aromatic liquid crystal polymer selected from among copolyesters, polyester carbonates and polyester amides and (B) 50 to 85 wt.%, pref. 65 to 80 wt.%, of a mineral crystal filler selected from among sintered ceramics having a heat conductivity of at least 10 W/mK, pref. at least 30 W/mK, and an electrical insulation resistance of higher than 1515 Ωcm.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A) 平3-126765

⑤ Int.Cl.⁵

C 08 L 101/00
C 08 K 3/00

識別記号

L SY
K A A

庁内整理番号

8016-4 J
7167-4 J
7220-5 F

⑬ 公開 平成3年(1991)5月29日

H 01 L 23/36 M※
審査請求 有 請求項の数 12 (全6頁)

⑭ 発明の名称 耐高熱性複合材料

⑯ 特 願 平2-263694

⑰ 出 願 平2(1990)10月1日

優先権主張 ⑱ 1989年10月2日 ⑲ 西ドイツ(DE) ⑳ P 3932882.1

㉑ 発 明 者 ラルフ、クリエンス ドイツ連邦共和国ミュンヘン60、ミューラーヴェーク1ア
ー

㉒ 発 明 者 フランツ、ベーツル ドイツ連邦共和国バサウ、ビショツフランダースドルファ
ーシュトラッセ6

㉓ 出 願 人 シーメンス、アクチエ ドイツ連邦共和国ベルリン及ミュンヘン(番地なし)
ンゲゼルシャフト

㉔ 出 願 人 ヘキスト、アクチエ ドイツ連邦共和国フランクフルト(番地なし)
ゲゼルシャフト

㉕ 代 理 人 弁理士 富 村 深
最終頁に続く

明 細 書

1. 発明の名称 耐高熱性複合材料

2. 特許請求の範囲

1) 180℃以上での熱形状安定性を有する耐
高熱性の熱可塑性ポリマー15～50重量%
及び10W/mk以上の熱伝導性を有する複
合物性結晶充填材50～85重量%からなり、
この押出成形可能及び射出成形可能な複合材
料が少なくとも1W/mkの熱伝導性、18
0℃以上での熱形状安定性及び3KV/mm以
上の電気絶縁耐力を有することを特徴とする
耐高熱性複合材料。

2) 複合材料がポリマー20～35重量%を含
んでいることを特徴とする請求項1記載の複
合材料。

3) 耐高熱性ポリマーが熱可塑性樹脂であり、
液晶ポリマー(LCP)、ポリフェニレンス
ルフィド(PPS)、ポリエーテルイミド(
PEI)、ポリエーテルスルホン(PES)、
ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)、

ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポ
リスルホン(PSU)、ポリアリールエーテ
ルケトン、ポリアミド/イミド(PAI)、
ポリイミド(PI)及びポリアミド(PA)
の群から選択されることを特徴とする請求項
1又は2記載の複合材料。

4) 充填剤が焼結セラミックであり、窒化アル
ミニウム、酸化アルミニウム、窒化硼素、炭
化珪素、炭化硼素及び窒化珪素の群から選択
されることを特徴とする請求項1ないし3の
1つに記載の複合材料。

5) 液晶ポリマー20～35重量%及び30W
/mkより高い熱伝導性及び15¹⁰オームcm
より高い電気絶縁抵抗値を有する結晶性充填
材55～80重量%からなることを特徴とす
る請求項1ないし4の1つに記載の複合材料。

6) コポリエステル、ポリエステルカーボネ
ート及びポリエステルアミドから選択される少
なくとも一部が芳香族の液晶ポリマーを有す
ることを特徴とする請求項5記載の複合材料。

- 7) 充填材が50 μm 未満の粒径を有していることを特徴とする請求項1ないし6の1つに記載の複合材料。
- 8) 充填材が繊維状の形で存在することを特徴とする請求項1ないし6の1つに記載の複合材料。
- 9) 帯電防止剤、熱及び光安定剤、顔料、染料、蛍光増白剤、遮光剤、難燃剤及び減摩剤及び潤滑剤、特に脂肪族アルコール、ジカルボン酸エステル、脂肪族エステル、脂肪酸、脂肪族石炭酸及び脂肪族アミドから選択される他の通常の添加剤を含むことを特徴とする請求項1ないし8の1つに記載の複合材料。
- 10) モンタン酸（炭素原子を26〜32個有する）、炭素原子数が20を超える合成ジカルボン酸、そのエステル及び石炭酸、パラフィン、ポリエチレン及びポリプロピレン及びそれらの顔化物、並びにアミド類から選択される一種又は数種の種を含むことを特徴とする請求項9に記載の複合材料。

- 3 -

樹脂からなる公知の被覆は同時に必要とされる良好な電気絶縁性を有するとはいえ、しばしば約0.2〜0.4 W/mkの十分ではない熱伝導性を有するにすぎない。

この低い熱伝導性を高めるために、相応する熱伝導性の粒子を充填したプラスチックが使用される。欧州特許第167000号明細書ではアルミニウム粒子が充填材として提案されている。この場合充填材粒子を密閉ポリエチレン層で被覆することによって、これで充填されたプラスチックの十分な電気絶縁性を保証する。その結果約2〜5 W/mkの熱伝導値が得られるが、これは220ボルトで作動されるデバイスで使用する場合はあらゆる要件を満たすには、耐電圧は全く不十分である。

（発明が解決しようとする課題）

従って本発明の課題は、少なくとも1.5 W/mkの良好な熱伝導性を有し、かつ電気絶縁性であり、220ボルトで効果的に作動するデバイスに使用することのできる絶縁耐力を有する材料を提

- 11) 銅を0.1〜5重量%含むことを特徴とする請求項10記載の複合材料。
- 12) 特にカバー、被覆又は容器として電気及び電子デバイスにおける電気絶縁性及び良好な熱伝導性部分に使用されることを特徴とする請求項1ないし11の1つに記載の複合材料。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は熱伝導性の優れた耐高熱性複合材料に関する。

〔従来の技術〕

電子デバイスの小型化が進みまたそれに伴って電子回路及びモジュールの集積密度が高まることにより、デバイスの運転時に生じる損失熱が問題となる。デバイスを過熱による損傷から保護するには、出力密度を高めることによって増大する熱をデバイスから排除する必要がある。

デバイスの被覆又は容器が密閉されている場合、生じる損失熱は被覆又は容器の材料を介して排出しなければならない。充填材を持たない熱可塑性

- 4 -

供することにある。

〔課題を解決するための手段〕

この課題は本発明によれば、180℃以上での熱形状安定性を有する耐高熱性の熱可塑性ポリマー15〜50重量%及び10 W/mk以上の熱伝導性を有する鉱物性結晶充填材50〜85重量%からなり、この押出成形可能及び射出成形可能な複合材料が少なくとも1 W/mkの熱伝導性、180℃以上での熱形状安定性及び3 kV/mm以上の電気絶縁耐力を有することにより解決される。

本発明の他の実施態様並びにこの複合材料の使用は請求項2以下に記載されている。

〔作用効果〕

本発明は、本発明による複合材料の有利でしかも驚異的な特性に基づくものである。従来鉱物性の硬い充填材は極めて難しい状況の下に加工することができなすぎない。それというのでも使用した充填材粒子の硬さが使用装置を著しく削摩し、従ってその加工は不経済なものとなるからである。また加工はこれまで一定の充填材含有量まで可

- 5 -

- 5 -

能であったにすぎない。本発明による複合材料は極めて良好な押出成形可能性を示し、また 35 重量%の最大充填材含有量まで射出成形可能である。上記の範囲で達成される熱伝導値は 1.5 W/mk を越え、その際同時に $3 \text{ kV}_{rms}/\text{mm}$ 以上の絶縁耐力が得られる。この特性は、良好な電気絶縁性と同時に高い熱伝導性を必要とする電気及び電子デバイスの被覆、容器等を製造するのに、この複合材料を極めて適したものとする。

複合材料の高い充填材含有量及びそれにより達成される特性は、使用すべきポリマーを選択することにより可能となる。必要とされる温度及び熱形状安定性は、例えば同時に他の好ましい特性を有した複合材料用として極めて適しているいわゆる高熱可塑性樹脂によって満足される。これらのポリマーは高度に配列された構造を有し、従って充填材粒子に対し上記の高い充填度を達成するのに十分な空間を提供する。その際これらのポリマーは加工条件下に、特に高圧及び高い加工温度で高い流動性を示し、その結果充填材含有量が

高いにも拘らず複合材料の加工に著しく高い力を必要とする必要はまったくない。この場合同時に使用した加工装置の早期磨耗及びそれによる耐用寿命の短縮は阻止される。

本発明による複合材料にも適している耐高熱性の熱可塑性樹脂は、特に液晶ポリマー (LCP)、ポリフェニレンスルフィド (PPS)、ポリエーテルイミド (PEI)、ポリエーテルスルホン (PES)、ポリエーテルエーテルケトン (PEEK)、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリブチレンテレフタレート (PBT)、ポリスルホン (PSU)、ポリアリーールエーテルケトン、ポリアミド/イミド (PAI)、ポリイミド (PI) 並びに種々異なるポリアミド (例えば PAI 6、PAI 11 及び PAI 12) である。

本発明による複合材料として特に適しているのは、その名前から液状でも高度に配列された構造を有することを示している液晶ポリマーである。これらのポリマーで最高の充填度が得られる。有利な液晶ポリマーは少なくとも部分的に芳香族構

- 7 -

造を有し、コポリエステル、ポリエステルカーボネート及びポリエステルアミドから選択される。

熱伝導性の良好な複合材料にとっては、高い熱伝導性を有し、同時に電気絶縁性である充填材が必要である。これは特に、熱伝導を格子振動 (フォノン) によって (しかし電子の寄与によってではなく) 実現する結晶充填材である。これにより充填材、従って複合材料の電気絶縁特性が保証される。

しかし複合材料の高い熱伝導性にとって最も重要なことは、充填材の伝導性にあるのではなく、複合材料における充填材の容積比である。従って良好な充填材を選択する基準は、その熱可塑性樹脂との相容性又は適当な熱可塑性樹脂と組み合わせで高い充填度を得る可能性にある。

適当な充填材は周期律表第 3 ~ 第 6 主族の元素の酸化物、窒化物及び炭化物の群から選択される。この種の焼結セラミックの群に数えられる化合物は例えば窒化アルミニウム、酸化アルミニウム、酸化硼素、炭化硅素、炭化硼素及び窒化硅素であ

る。複合材料の特に良好な特性をもたらすことのできる充填材は窒化アルミニウムである。しかしその価格が高価なためこれを大量に使用することは不経済である。この観点から酸化アルミニウムを優先的に選択すべきである。炭化硅素は経済性と諸特性との良好な妥協点をもたらす。しかし炭化硅素で充填された複合材料は、炭化硅素が弱い半導体であることから、若干低めの電気絶縁耐力の強さを示す。

充填材粒子は $50 \mu\text{m}$ 未満の粒径を有するのが有利である。この場合粒子の形状は任意であり、製造方法によって影響されるのみである。短繊維を充填材として使用した場合には極めて良好な熱伝導特性を有する複合材料が得られるが、この繊維は高価であることから従来経済的に使用することは不可能である。ほぼ球形をした粒子の充填材の場合、充填材含有量は例えば 50 重量%に達するが、これは充填材及びポリマーとの関連においては例えば 70 重量%に相当する。従って約 2 W/mk の熱伝導値が得られる。

- 8 -

- 9 -

- 10 -

先に記載した熱可塑性樹脂及び充填材により上記範囲内で次の特性を有する複合材料が得られる。すなわちこの複合材料はこの形ですでに良好に加工可能、すなわち押出成形可能及び射出成形可能であり、また上記の電気又は電子分野での使用に適している。しかし特設な使用目的の場合にはこの複合材料に他の成分を含めることもできる。この成分は特定の性質を得るための常用の添加剤であってよく、例えば帯電防止剤、熱及び光安定剤、顔料、染料、蛍光増白剤、離型補助剤、難燃性添加剤又は減摩剤及び潤滑剤から選択される添加剤である。すでに記載したように上記複合材料に対してはいかなる添加剤も必要ではない。特に熱可塑性樹脂としてLCPを有する複合材料は、防火基準UL94V0に対する要件を満足し、また特に容易に加工することができる。しかしいくつかの複合材料に対しては特に減摩剤及び潤滑剤を添加することによって別の利点、特に易加工性を得ることが可能である。従って脂肪酸アルコール、ジカルボン酸エステル、脂肪酸エステル、脂肪酸、

脂肪酸石鹸及び脂肪酸アミド又はこれらから誘導される化合物は有利な添加剤である。例えば複合材料には一種又は数種の糖を0.05〜10重量%の量で、特に0.1〜5重量%の量で含ませてもよい。この種の糖は例えば約26〜32個のC原子を有するモンタン糖、20個以上のC原子を有する合成ジカルボン酸、そのエステル及び石鹸、パラフィン、ポリエチレン及びポリプロピレン糖及びそれらの酸化物、並びにアミド糖から選択することができる。

複合材料は通常の熱可塑性樹脂と同様にして加工することができる。この材料は押出成形可能及び射出成形可能である。この複合材料を加工するのに適した装置は例えば欧州特許出願公開第199340号明細書に記載されている。複合材料を製造するために相応する熱可塑性樹脂を顆粒として充填材と一緒に押出加工する。こうして得られた材料を再び顆粒状にし、この形で射出成形装置内で相当する構造部材に加工することができる。大工業的な装置では充填材を捏和することによ

- 11 -

てポリマーに加えることも可能である。

(実施例)

以下に実施例として本発明に基づく複合材料用の三種の組成物を記載し、また図面においてその用途を説明する。

第1実施例

例えば欧州特許出願公開第199340号明細書に記載されているような二軸スクリーン押出機中で、酸化アルミニウム（粒径0〜30 μ m）70重量%及び液晶ポリマー（例えば商品名ベクトラ（Vectra）C950、ヘキスト社製）30重量%からなる混合物を押出加工する。

この押出加工物から電氣的及び物理的パラメータを測定するため規格の射出成形物を製造する。この複合材料は2W/mkの熱伝導値、10¹¹オームcmを超える比絶縁抵抗、5kV/mmの破壊電圧及び150℃以上の連続使用温度を有する。UL94V0による防火仕様は厚さ2mmまで満足する。

この複合材料は容易に、構造物内の損失熱の除去

- 13 -

に又は冷却体として使用可能である。

第2実施例

第1実施例に基づき炭化珪素（例えば商品名シルカルN（Silcar N）、エレクトロシュノルツウエルク・ケンプトン（Elektroschmelzwerk Kempton）社製）60重量%及びLCP（例えば商品名ベクトラ（Vectra）C950）40重量%からなる混合物を押出加工する。これから製造された射出成形物は1.5W/mkの熱伝導値、10¹¹オームcmを超える比絶縁抵抗、3kV/mmの破壊電圧及び少なくとも150℃の連続使用温度を有する。UL94V0により防火仕様は2mmまで満足する。

第3実施例

同様にして酸化アルミニウム（ESK社製）35重量%及びLCP65重量%からなる混合物を押出加工する。これから仕上げられた射出成形物は5kV/mm以上の破壊電圧10¹¹オームcmを超える比絶縁抵抗及び少なくとも150℃の連続使用温度を有する。UL94V0に基づく防火

- 14 -

仕様は同様に2mmまで満足する。

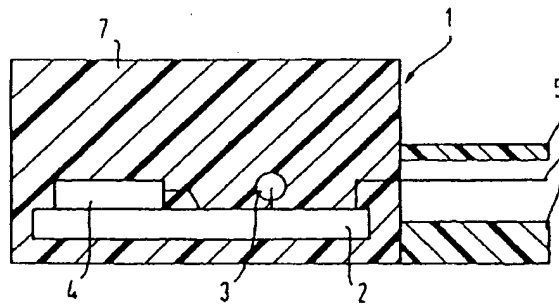
図面には環境の影響から保護するためカプセル化された例えば自動車用の電子パワーデバイスが示されている。回路板2上に配設されたモジュールのうち図面にはパワートランジスタ4及びデバイス3のみが描かれている。すべてのモジュール2、3、4は本発明による複合材料を顕露されており、従ってパワーデバイス1はこのカプセル7により環境の影響例えば湿気に対して気密に遮断される。給電のための電気接続はプラグ5を介して行うことができる。

4. 図面の簡単な説明

図面は本発明による複合材料から製造された電子デバイス用被覆の略示横断面図である。

- 1…パワーデバイス
- 2…回路板
- 3…デバイス
- 4…パワートランジスタ
- 5…プラグ
- 7…カプセル

(5118) 代理人 有限会社 高村 隆夫
- 1 5 -



第1頁の続き

⑤Int. Cl.³

識別記号

庁内整理番号

H 01 L 23/373

- | | | |
|--------|------------------|----------------------------------|
| ⑫発 明 者 | デイトリツヒ、フ
イシャー | ドイツ連邦共和国ケルクハイム、ザイテルスヴェーク19 |
| ⑬発 明 者 | ギユンター、キルシュ | ドイツ連邦共和国バートゾーデン、パウリネンシュトラ
セ24 |